

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号
特表2001-513826
(P2001-513826A)

(43) 公表日 平成13年9月4日(2001.9.4)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	FI	テームト [*] (参考)
C09K 11/06	650	C09K 11/06	650
C07D 487/04	138	C07D 487/04	138
H05B 33/14		H05B 33/14	B

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 73 頁)

(21) 出願番号 特願平10-532504
 (86) (22) 出願日 平成10年1月21日(1998.1.21)
 (85) 翻訳文提出日 平成11年8月3日(1999.8.3)
 (86) 国際出願番号 PCT/EP98/00314
 (87) 国際公開番号 WO98/33862
 (87) 国際公開日 平成10年8月6日(1998.8.6)
 (31) 優先権主張番号 97810049.3
 (32) 優先日 平成9年2月3日(1997.2.3)
 (33) 優先権主張国 ヨーロッパ特許庁 (EP)
 (31) 優先権主張番号 97810050.1
 (32) 優先日 平成9年2月3日(1997.2.3)
 (33) 優先権主張国 ヨーロッパ特許庁 (EP)

(71) 出願人 チバ スペシャルティ ケミカルズ ホールディング インコーポレーテッド
 スイス国 4057 バーゼル クリベックシュトラッセ 141
 (72) 発明者 大谷 涼司
 兵庫県神戸市灘区篠原台5-1-1201
 (72) 発明者 國本 和彦
 大阪府高槻市芥川町4-9-3
 (72) 発明者 出野 貴
 兵庫県西宮市名塩南台1-7-3
 (74) 代理人 弁理士 津国 泰 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 蛍光材料及びそれらの使用

(57) 【要約】

(a) ホスト発色団のマトリックス内に埋め込まれたゲスト発色団の有効量、又は (b) ポリマーマトリックス内に両方埋め込まれたホスト発色団及びゲスト発色団の有効量を含む配合物であって、ゲスト発色団の吸収スペクトルがホスト発色団の蛍光発光スペクトルと重なり、ホスト発色団がベンゾ [4, 6] イミダゾ [2, 1-a] イソインドール-11-オン類からなる群から選ばれることを特徴とする配合物。

(2)

特表2001-513826

【特許請求の範囲】

1. (a) ホスト発色団のマトリックス内に埋め込まれたゲスト発色団の有効量、又は (b) ポリマーマトリックス内に両方埋め込まれたホスト発色団及びゲスト発色団の有効量を含む配合物であって、

ゲスト発色団の吸収スペクトルが、ホスト発色団の蛍光発光スペクトルと重なり、ホスト発色団が、ベンゾ[4, 5]イミダゾ[2, 1-a]イソインドール-1,1-オン類からなる群から選ばれることを特徴とする配合物。

2. (a) ゲスト発色団が、ホスト発色団のマトリックス内に均一に分布しているか、又は (b) ホスト発色団及びゲスト発色団が、両方とも、ポリマーマトリックス内に均一に分布していることを特徴とする、請求項1記載の配合物。

3. ゲスト発色団が、キナクリドン類、ペリレン類、ペリノン類、ジケト-及びジチオケトピロロピロール類、ローダミン類、クマリン類、キサンテン類、オキサジン類、オキサゾール類、シアニン類、フタロシアニン類、ポルフィリン類、スチリル染料類、金属錯体類及びそれらの混合物よりなる群から選ばれることを特徴とする、請求項1又は2記載の配合物。

4. ホスト発色団及びゲスト発色団、及び所望ならばポリマーマトリックスを含み、ゲスト発色団の吸収スペクトルが、ホスト発色団の蛍光発光スペクトルと重なる、請求項1～3のいずれか1項記載の配合物を製造するための方法であって、

(a) ホスト発色団をベンゾ[4, 5]イミダゾ[2, 1-a]-イソインドール-1,1-オン類よりなる群から選択し、

(b) 溶媒の存在下に、ホスト発色団及び少なくとも1種のゲスト発色団の有効量、及び場合によりポリマー又は重合性前駆体を混合し、そして

(c) 次に、場合により工程(b)のポリマーの存在下に、ホスト及びゲスト発色団を沈殿させるか、又は

(3)

特表2001-513826

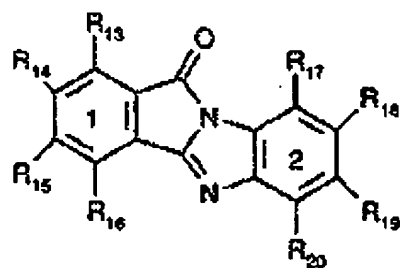
はそれら両方と混合して、重合性モノマー又はプレポリマーを含む配合物。

6. 配合物であって、重合されたホトレジスト材料の高浮き彫り画像を有する担体材料（これは、所望ならば、そこに溶解／若しくは均一に分布された、粒子を含有している粉末の形態の請求項1記載の配合物、又は請求項1記載のホスト及びゲスト発色団、又は両方を含む）を含むことを特徴とする配合物。

7. 担体上に蛍光性の高浮き彫り画像を製造する方法であって、遮蔽下で、又はレーザー筆記により、好ましくは乾燥され、溶媒を除去されている、担体上の請求項5記載の被覆された光重合性配合物を、遮蔽下で照射またはレーザー書き込みし、露光された配合物を現像し、次いで最終的に非露光部分を除去することを特徴とする方法。

8. 蛍光性材料としての、請求項1～3のいずれか1項記載の配合物又は請求項4記載の方法により製造された配合物の使用。

9. 式V：



(V)

(式中、

R_{13} 、 R_{14} 、 R_{15} 及び R_{16} の多くて三つは、Hであり、そして R_{13} 、 R_{14} 、 R_{15} 及び R_{16} の少なくとも一つは、 $C_1 \sim C_{18}$ アルキル、 $C_1 \sim C_{18}$ アルコキシ、 $C_1 \sim C_{18}$ アルキルチオ、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ-ポリ $C_2 \sim C_6$ オキシアルキレン：非置換又はF、Cl、Br、-CN、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキル、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ、若しくは $-NR_{21}R_{22}$ で置換された $C_5 \sim C_8$ シクロ

(4)

特表2001-513826

キシ、フェニル- $C_1 \sim C_4$ アルキルチオの群から選ばれる置換基であるか：あるいは

R_{13} 及び R_{14} は一緒になって、 R_{15} 及び R_{16} は一緒になって、又は R_{13} 及び R_{14} は一緒になって、並びに R_{15} 及び R_{16} は一緒になって、又は R_{14} 及び R_{15} は一緒になって、基： $-CH=CR_{24}-CR_{25}=CH-$ 、 $-N=CR_{24}-CR_{25}=CH-$ 、 $-CH=CR_{24}-CR_{25}=N-$ 、 $-CH=N-CR_{25}=CH-$ 、 $-CH=CR_{24}-N=CH-$ 、 $-N=CR_{24}-CR_{25}=N-$ 、 $-N=CR_{24}-N=CH-$ 、 $-CH=CH-O-$ 、 $-CH=CH-S-$ 、 $-CH=CH-NR_{23}-$ から選ばれ；

R_{17} 及び R_{20} は、互いに独立して、Hであるか、又は R_{18} の意味を有し：

R_{18} 及び R_{19} の一方は、Hであり、 R_{18} 及び R_{19} の他方又は両方は、 $C_1 \sim C_{18}$ アルキル、 $C_1 \sim C_{18}$ アルコキシ、 $C_1 \sim C_{18}$ アルキルチオ、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ-ポリ $C_2 \sim C_6$ オキシアルキレン；非置換又はF、Cl、Br、 $-CN$ 、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキル、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ、若しくは $-NR_{21}R_{22}$ で置換された $C_5 \sim C_8$ シクロアルキル、 $C_5 \sim C_8$ シクロアルコキシ、 $C_5 \sim C_8$ シクロアルキルチオ、 $C_5 \sim C_8$ シクロアルキル- $C_1 \sim C_4$ アルキル、 $C_5 \sim C_8$ シクロアルキル- $C_1 \sim C_4$ アルコキシ、 $C_5 \sim C_8$ シクロアルキル- $C_1 \sim C_4$ アルキルチオ、フェニル、フェニルオキシ、フェニルチオ、フェニル- $C_1 \sim C_4$ アルキル、フェニル- $C_1 \sim C_4$ アルコキシ、フェニル- $C_1 \sim C_4$ アルキルチオ、フェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキリデン、フェニル- $C(O)-$ 、フェニル- $NR_{23}-C(O)-$ 、フェニル- $NR_{23}-S(O)_2-$ 、フェニル- $S(O)-$ 、フェニル- $S(O)_2-$ 、フェニル- CO_2- 、フェニル- $S(O)-O-$ 、フェニル- SO_3- 、フェニル- $NR_{23}-$ 、若しくはフェニル- $CH=CH-$ の群から選ばれる置換基であるか：あるいは

(5)

特表2001-513826

↑10Wüüüüü

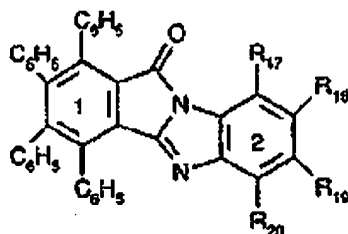
$\text{CR}_{24}-\text{N}=\text{CH}-$ 、 $-\text{N}=\text{CR}_{24}-\text{CR}_{25}=\text{N}-$ 、 $-\text{N}=\text{CR}_{24}-\text{N}=\text{CH}-$ 、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{O}-$ 、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{NR}_{23}-$ の群から選ばれ：

R_{21} 及び R_{22} は、互いに独立して、 $\text{C}_1\sim\text{C}_{20}$ アルキル、フェニル、 $\text{C}_1\sim\text{C}_{12}$ アルキルフェニル、ベンジル若しくは $\text{C}_1\sim\text{C}_{12}$ アルキルベンジル、又は R_{21} 及び R_{22} は、一緒になって、テトラメチレン、ペンタメチレン若しくは $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-$ であり；

R_{23} は、 H 、 $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルキル又はベンジルであり；そして

R_{24} 及び R_{25} は、互いに独立して、 H 、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキル、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルコキシ、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキルチオ、又は F 、 Cl 若しくは Br である）で示される化合物。

10. 式VI：



(VI)

(式中、

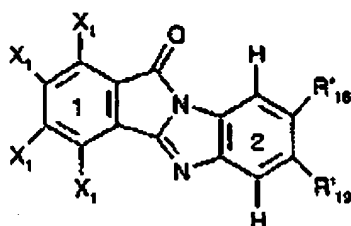
R_{17} 及び R_{20} は、 H であり、そして R_{18} 及び R_{19} 又は両方は、 $\text{C}_1\sim\text{C}_{18}$ アルキル又は $\text{C}_1\sim\text{C}_{18}$ アルコキシであるか、あるいは R_{18} 及び R_{19} は、一緒になって、 $-\text{CH}=\text{CR}_{24}-\text{CR}_{25}=\text{CH}-$ を意味し；あるいは R_{17} 及び R_{18} は一緒になって、又は R_{19} 及び R_{20} は一緒になって、又は R_{17} 及び R_{18} は一緒になって、並びに R_{19} 及び R_{20} は一緒になって、 $-\text{CH}=\text{CR}_{24}-\text{CR}_{25}=\text{CH}-$ を意味し、ここで、 R_{24} 及び R_{25} は、互いに独立して、 H 、 F 、 Cl 、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキル又は $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルコキシである）

で示される化合物に対応することを特徴とする請求項9記載の化合物。

11. 式VIa：

(6)

特表2001-513826



(VIa)

(式中、

 X_1 は、Cl又はBrであり、

R'_{18} 及び R'_{19} の一方又は両方は、互いに独立して、 $-COOH$ 、又は α -若しくは α 、 α -分岐の $C_3 \sim C_{20}$ アルキル、若しくは $R_a-C(O)-$ (ここで、 R_a は、 $C_1 \sim C_{20}$ アルキルを意味する)：又は $C_5 \sim C_8$ シクロアルキル、 $C_5 \sim C_8$ シクロアルキル- CH_2- 、フェニル、ベンジル(これらは、非置換又はハロゲン、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキル若しくは $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシで置換されている)であるか、あるいは

R'_{18} 及び R'_{19} の一方は、 α -若しくは α 、 α -分岐の $C_3 \sim C_{20}$ アルキル若しくは $R_a-C(O)-$ (ここで、 R_a は、 $C_1 \sim C_{20}$ アルキルを意味する)：又は $C_5 \sim C_8$ シクロアルキル、 $C_5 \sim C_8$ シクロアルキル- CH_2- 、フェニル、ベンジル(これらは、非置換又はハロゲン、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキル若しくは $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシで置換されている)であり、そして R'_{18} 及び R'_{19} の他方は、直鎖状の $C_1 \sim C_{12}$ アルキルである)

で示される化合物。

12. エレクトロルミネヤンス(「EL」)デバイス内の、又は該デバイスの製造のための有機発光材料としての、化合物V、VI及びVIa及び請求項1～3のいずれか1項記載の配合物の使用。

13. 請求項12記載のエレクトロルミネセンスデバイス。

(7)

特表2001-513826

【発明の詳細な説明】

蛍光材料及びそれらの使用

本発明は、(a) ホスト発色団のマトリックス内に埋め込まれた (embedded in) ゲスト発色団の有効量、又は (b) ポリマーマトリックス内に両方埋め込まれたホスト発色団及びゲスト発色団の有効量を含む配合物であって、ゲスト発色団の吸収スペクトルがホスト発色団の蛍光発光スペクトルと重なり、ホスト発色団がベンゾ[4,5]イミダゾ[2,1-a]イソインドール-11-オン類よりなる群から選ばれる配合物である。

更に、本発明は、本配合物の製造方法、本配合物を含む重合性配合物、本配合物を含有する重合されたフォトレジスト材料の高浮き彫りを有する担体材料を含む配合物、担体上に蛍光性の高浮き彫り画像を製造する方法、蛍光材料、特にエレクトロルミネセントデバイス (electroluminescent devices) としての本配合物の使用、及び新規な非-官能性ベンゾベンゾ[4,5]イミダゾイミダゾ[2,1-a]イソインドール-11-オン誘導体に関する。

強化された蛍光、並びに吸収極大及び発光極大間の大きな相違を有する材料を製造するため、ホスト発色団をその中に溶解したゲスト発色団とともに含む組み合わせは、広い範囲の可能性及び実際の技術応用を有する高度に所望された材料である。吸収(励起)極大及び発光極大間の大きな相違は、それぞれのホストとゲスト発色団間の共鳴エネルギー移動の発生によるものである。

ゲスト発色団の吸収スペクトルとホスト発色団の蛍光発光スペクトルとが重なる領域を有する発色団間のエネルギー移動の可能性は知られている。例えば、H. Port et al, Z. Naturforsch., 36a, pages 697-704 (1981) において、ジベンゾフランでドーブされたフルオレンの混合結晶又は100 K以下の温度でUV領域では強化された蛍光を有するゼンズインダンに記載している。しかしながら、低温蛍光は、実用価値を全く有しておらず、科学的興味の対象のみである。

J. Appl. Phys., 65, 3610 to 3616 (1989) 中に、C. W. Tang et al. は、8-ヒドロキシキノリンアルミニウムからなり、その中にクマリンのような蛍光分子でドーブされたゾーンが埋め込まれ、光発生層を備えた複層(多層)エレクトロルミネセントデバイス(電場発光デバイス)を開示している。そのデバイスは

(8)

特表2001-513826

改良されたエレクトロルミネセンス、及びある特定のドーバントに依存している効果的なストークスの色シフト (Stoke's color shift) を示す。そのデバイスの製造は、複雑であり、工業的生産に容易には適切ではない。

J. Phys. Chem. 97, 5058-5064 (1993) 中に、J. M. Lang et al. は、ホストとしてクマリン、ゲストとしてローダミンの組合わせを記載し、それにより両方の成分がポリアクリル酸に溶解するが、Langの研究によれば、強化された蛍光は高圧下のみであることを実証している。

WO 93/23492には、強化されたストークスのシフト (Stokes shift) を有する蛍光微粒子が開示され、それはポリマー性微粒子に吸収されるか、又は結合されている可溶性の蛍光ホスト及びゲスト染料からなる。その材料は、DNA又はRNAのような核酸の光学的な検出に用いられる。都合の悪いことに、これらの微粒子の固体状態の蛍光は劣っている。

US 5,227,252は、ホストとして8-ヒドロキシキノリンアルミニウムを、ゲストとしてキナクリドン類の蛍光性配合物を開示している。同様に、JP-A-05320633では、ホストとして8-ヒドロキシキノリンアルミニウムを、ゲストとしてジケトピロロピロール類の蛍光性配合物を開示している。しかしながら、両方の文献では、ゲストは不溶性の材料であり、それらは主に微細化したクラスターとして溶解している。微細化したクラスターの発生は、共昇工程が製造方法の手段であることに起因する。その材料は、通常の単一成分蛍光材料で見出されるよりも大きなストークスのシフトを有しており、例えば、エレクトロルミネセントデバイスで光を発光する材料として用いられる。それらの製造方法は、所望の混合材料を達成するために、真空及び温度のような工程条件の注意深い制御を確実にするために、技術機器に多大の費用を必要とする。その工程は、大規模な工業生産には都合が悪い。

EP-A-0456609には、選択された溶媒の存在下での、1, 2, 3, 4-テトラクロロベンゾ [4, 5] イミダゾ [2, 1-a] イソインドール-11-オン及びその誘導体類の製造方法が開示されている。これらの化合物は、固体状態蛍光

(9)

特表2001-513826

と改良された屋外耐性を示す顔料である。その中には、更に、95%イエロー1, 2, 3, 4-テトラクロロベンゾ[4, 5]イミダゾ[2, 1-a]イソ

インドール-11-オンと5%インダントロンブルーの組合わせが、緑色蛍光顔料を生成させることが示唆されている。すなわち、そのような系は、顔料複合体であり、そこで生成された新しい色は単に2成分の色の和である。その色は、混合物の成分間の密接な交互作用を要する複雑な分子レベルのエネルギー移動の発生に基いて創製されていない。

F. W. Harris et. al.は、ACS Symp. Ser. 132, 39 (1980)において、宇宙空間の応用での可能性のある利用のために、フェニル化ピロロン類 (pyrrolones) に係わる彼等の研究の一部としての(as a part of their investigations into)、モデル材料として、化合物1, 2, 3, 4-テトラフェニルベンゾ[4, 5]イミダゾ[2, 1-a]イソインドール-11-オンを記載している。しかしながら、その蛍光挙動は全く示唆されていない。

かくして、本発明に係わる目的は、上記の欠点を示さない蛍光性配合物、好ましくは配合物、

- 大きく強化され、かつ強固な蛍光発光を有し、
- 強固な固体状態蛍光を示し、そこで発光スペクトルは、好ましくは電磁スペクトルの可視領域内にあり、
- UV及び可視領域の両方の波長を用いて励起可能であり、
- 非常に優れた光安定性及び屋外耐久性を示し、
- 適切なゲスト分子の選択を通して広範な発光スペクトルを示し(色調整)、
- 高い熱安定性を有し、
- 容易に、つまり沈殿(共沈)法により、調製され、
- エレクトロルミネセンスデバイスの製造に用いることができ、

ホスト発色団が、ベンゾ[4, 5]イミダゾ[2, 1-a]イソインドール-11-オン類からなる群から選ばれるのならば、それは基本物質としてベンゾ[4, 5]イミダゾ[2, 1-a]イソインドール-11-オンの誘導体を意味するべきである配合物を見出すことであった。

(10)

特表2001-513826

更に、本発明の配合物の増強因子は、好ましくは全て正の数であり、少なくとも1、3、より好ましくは少なくとも2、そして最も好ましくは少なくとも5である。本明細書中で用いる用語「増強因子」は、いかなる蛍光ゲスト部分をも含

有しない同一の粉末と比較した、ホスト及びゲスト蛍光部分を含む固体状態粉末の発光強度ピーク波長において増加又は減少する因子として定義されている。励起放射波長が同一である限り、比較は真であると考えられる。一般的に、ホスト／ゲスト材料の発光波長は、ゲスト成分を含まない同一の物質と比較して、より長い波長（より低いエネルギー）で起こる。

したがって、(a) ホスト発色団のマトリックス内に埋め込まれたゲスト発色団の有効量、又は (b) ポリマーマトリックス内に両方とも埋め込まれたホスト発色団及びゲスト発色団の有効量を含む配合物であって、ゲスト発色団の吸収スペクトルがホスト発色団の蛍光発光スペクトルと重なり、ホスト発色団がベンゾ [4, 5] イミダゾ [2, 1-a] イソインドール-11-オン類からなる群から選ばれる配合物が見出された。

更に、本配合物の製造方法、本配合物を含む重合性配合物、本配合物を含有する重合されたフォトレジスト材料の高浮き彫りを有する担体材料を含む配合物、担体上キャリアーの蛍光性の高浮き彫り画像の製造方法、蛍光材料、特にエレクトロルミネセントデバイスとしての本配合物の使用、及び新規な非-官能性ベンゾベンゾ [4, 5] イミダゾイミダゾ [2, 1-a] イソインドール-11-オン誘導体も、また、見出された。

本発明の第一の実施態様は、(a) ホスト発色団のマトリックス内に埋め込まれたゲスト発色団の有効量、又は (b) ポリマーマトリックス内に両方とも埋め込まれたホスト発色団及びゲスト発色団の有効量を含む配合物であって、ゲスト発色団の吸収スペクトルがホスト発色団の蛍光発光スペクトルと重なり、ホスト発色団がベンゾ [4, 5] イミダゾ [2, 1-a] イソインドール-11-オン類からなる群から選ばれる配合物に関する。

ホスト発色団は、ベンゾ [4, 5] イミダゾ [2, 1-a] イソインドール-11-オン及びベンゾ [4, 5] イミダゾ [2, 1-a] イソインドール-11

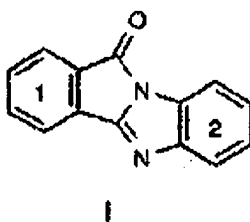
(11)

特表2001-513826

ーオン〔以下、ベンゾイミダゾイソインドロンという〕そのものからなる群から選ばれる。化合物は、有機溶媒又は水性溶媒に可溶な誘導体類であることが好ましい。

特徴において、ホスト発色団の溶解度は、ベンゾイミダゾイソインドロン誘導体好ましくは少なくとも10mg、より好ましくは少なくとも50mg、そして最も好ましくは少なくとも100mg、20℃でジメチルホルムアミドのような溶媒1リットル中に可溶であることを意味する。増加する温度では溶解度は高くなり、溶媒の選択に依存することは、自明である。

そのベンゾイミダゾイソインドロン類は、式I：



(式中、ベンゼン環1及び2の隣接炭素原子は、縮合していないか、又はベンゼン環、複素環式芳香族環、脂肪族環、又は複素環式脂肪族環、若しくは複素環式脂肪族環と縮合していて、そしてベンゼン環が1であるか、2であるか、又は両方である場合、縮合した環の部分又はすべては、非置換であるか又は有機基及び／又はハロゲン原子で置換されている)

で示されるものに対応していてもよい。

縮合環を形成する基は、好ましくは式： $-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}=\text{CH}-$ 、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{N}=\text{CH}-$ 、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}=\text{N}-$ 、 $-\text{CH}=\text{N}-\text{CH}=\text{N}-$ 、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{NR}_1-$ 、 $-\text{CH}=\text{N}-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{O}-$ 、 $-(\text{CH}_2)_3-$ 、 $-(\text{CH}_2)_4-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{NR}_1-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CH}_2=\text{CH}_2-\text{NR}_1-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O}-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O}-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{S}-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{O}-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O}-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{S}-\text{CH}_2-$ 、及び $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{S}-$ の二価の基（ここで、 R_1 は、Hであるか、若しくは有機

(12)

特表2001-513826

置換基であり、そして二価の基は非置換、又は有機基で置換されている) よりなる群から選ばれる。

有機置換基としての R_1 は、直鎖状又は分岐状の $C_1 \sim C_{20}$ アルキル、 $C_5 \sim C_7$ シクロアルキル、ベンジル若しくは $R_2-C(O)-$ (そこで、 R_2 は、 $C_1 \sim C_{20}$ アルキルである) であり、それは未置換又はF、Cl若しくは $C_1 \sim C_{12}$ ア

ルコキシで置換されていてもよい $C_1 \sim C_{20}$ アルキルであるか、あるいは未置換又はF、Cl、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキル若しくは $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシで置換されていてもよい、 $C_5 \sim C_7$ シクロアルキル、フェニル又は、ベンジルであつてもよい。

R_1 に好ましい例は、H、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、ベンジル、メチルベンジル、ジメチルベンジル、アセチル、プロピオニル、ブチロイル、ベンジル- $C(O)-$ 、フェニル- $C(O)-$ 、トリイル- $C(O)-$ 、モノ-、ジ-若しくはトリ-クロロアセチル、並びにモノ-、ジ-若しくはトリ-フルオロアセチル、モノ-及びジクロロフェニル- $C(O)-$ である。

有機置換基は、ハロゲン、 $-CN$ 、 $-NO_2$ 、 $C_1 \sim C_{18}$ アルキル、 $C_2 \sim C_{18}$ アルケニル、 $C_2 \sim C_{18}$ アルキニル、 $C_1 \sim C_{18}$ ヒドロキシアルキル、 $C_1 \sim C_{18}$ ハロゲンアルキル、 $C_3 \sim C_{12}$ シクロアルキル、 $C_6 \sim C_{18}$ アリール、 $C_5 \sim C_{17}$ ヘテロアリール、 $C_3 \sim C_{12}$ シクロアルキルアルキル、 $C_6 \sim C_{18}$ アラルキル、 $C_5 \sim C_{17}$ ヘテロアラルキル、 $C_1 \sim C_{18}$ アルキルオキシ、 $C_3 \sim C_{12}$ シクロアルキルオキシ、 $C_6 \sim C_{18}$ アリールオキシ、 $C_5 \sim C_{17}$ ヘテロアリールオキシ、 $C_3 \sim C_{12}$ シクロアルキルアルキルオキシ、 $C_6 \sim C_{18}$ アラルキルオキシ、 $C_5 \sim C_{17}$ ヘテロアラルキルオキシ、 $C_1 \sim C_{18}$ アルキルチオ、 $C_3 \sim C_{12}$ シクロアルキルチオ、 $C_6 \sim C_{18}$ アリールチオ、 $C_5 \sim C_{17}$ ヘテロアリールチオ、 $C_3 \sim C_{12}$ シクロアルキルアルキルチオ、 $C_6 \sim C_{18}$ アラルキルチオ、 $C_5 \sim C_{17}$ ヘテロアラルキルチオ、 $C_1 \sim C_{18}$ アルキル- $SO-$ 若しくは $-SO_2$ 、 $C_3 \sim C_{12}$ シクロアルキル- $SO-$ 若しくは $-SO_2$ 、 $C_6 \sim C_{18}$ アリール- $SO-$ 若しくは $-SO_2$ 、 $C_5 \sim C_{17}$ ヘテロアリール- $SO-$ 若しくは $-SO_2$ 、 $C_3 \sim C_{12}$ シクロアルキルアルキル- $SO-$ 若しくは $-SO_2$ 、 $C_6 \sim C_{18}$ アラルキル- $SO-$ 若しくは $-SO_2$ 、 C_1

* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

Fluorescence ingredients and those use The effective dose of the guest (embeddedin) chromophore by which this invention was embedded in MATOSOKKUSU of (a) host chromophore, Or it is a compound containing the effective dose of the host chromophore both embedded in (b) polymer matrix, and a guest chromophore. It is the compound chosen from the group which the absorption spectrum of a guest chromophore laps with the fluorescence emission spectrum of a host chromophore, and a host chromophore becomes from [benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-] a] iso indole-11-ON.

Furthermore, the polymerization nature compound with which this invention contains the manufacture approach of this compound, and this compound, The compound containing the support ingredient which has the high relief containing this compound of a photoresist ingredient by which the polymerization was carried out, Use of the approach of manufacturing the high relief image of fluorescence on support, a fluorescence ingredient, especially this compound as an electro luminescent device (electroluminescent devices), and new **-functionality benzo-- it is related with a benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-imidazo a] iso indole-11-ON derivative.

In order to manufacture the strengthened fluorescence and the ingredient which has the big difference between the absorption maximum and the luminescence maximum in a list, the combination included with the guest chromophore which dissolved the host chromophore into it is the ingredient for which the altitude which has the possibility of the large range and actual technical application asked. The big difference between the absorption (excitation) maximum and the luminescence maximum is based on generating of each resonance energy migration between a host and a guest chromophore.

The possibility of the energy transfer between the chromophores which have the field with which the absorption spectrum of a guest chromophore and the fluorescence emission spectrum of a host chromophore lap is known. For example, in H.Port et al.Z.Naturforsch., 36a, and pages 697-704 (1981), the ZENZU indan which has the fluorescence strengthened with the mixed crystal of a fluorene or 100K or less temperature doped by the dibenzofuran in UV field is indicated. However, low-temperature fluorescence does not have practical use value at all, but is only the object of scientific interest.

J. C.W.Tang et al. consists of 8-hydroxy kino RINARU minium, and the zone doped by fluorescence molecule like a coumarin is embedded into it into Appl.Phys., 65, and 3610 to 3616 (1989), and it is indicating the double layer (multilayer) electro luminescent device (electroluminescence device) equipped with the optical generating layer to it. The device shows the color shift (Stoke's color shift) of the improved electroluminescence and the effective stokes depending on a certain specific dopant.

Manufacture of the device is complicated and is not easily appropriate for industrial production.

J. Although J.M.Lang et al. indicates a coumarin as a host, and indicates the combination of a rhodamine as a guest and both components dissolve in polyacrylic acid by that cause into Phys.Chem.97 and 5058 - 5064 (1993), according to research of Lang, it is proved that the strengthened fluorescence is only the bottom of high pressure.

The fluorescence particle which has strengthened Stokes' shift (Stokes shift) is indicated by WO 93/23492, and it is set to it from the fluorescence host and guest color of fusibility which are absorbed

by the polymer nature particle or are combined. The ingredient is used for optical detection of a nucleic acid like DNA or RNA. The fluorescence of the solid state of these particles is inferior to it being inconvenient.

US 5,227,252 indicate 8-hydroxy kino RINARU minium as a host, and are indicating the fluorescence compound of Quinacridone as a guest. Similarly, in JP-A-05320633, 8-hydroxy kino RINARU minium is indicated as a host, and the fluorescence compound of diketo pyrrolo pyrroles is indicated as a guest. However, by both reference, a guest is an insoluble ingredient and they are dissolved as a cluster mainly made detailed. Generating of a cluster made detailed originates in a ** -sublimation process being the means of the manufacture approach. The ingredient is used as an ingredient which has the shift of big Stoke, for example, emits light in light with an electro luminescent device rather than it is found out with the usual single component fluorescence ingredient. Those manufacture approaches need great costs for a technical device, in order to attain the desired charge of an admixture and to ensure careful control of a vacuum and process conditions like temperature. The process is inconvenient to large-scale industrial production.

1, 2 and 3 under existence of the solvent chosen as EP-A-0456609, and 4- tetra--- the manufacture approach of [chloro-benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-] a] iso indole-11-ON and its derivatives is indicated. These compounds are pigments in which solid state fluorescence and the improved outdoor resistance are shown. the inside of it -- further -- the 95% yellow 1, 2, and 3 and 4- tetra--- [chloro-benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-] a] iso indole-11-ON and 5% indanthrone -- it is suggested that blue combination makes a green fluorescent pigment generate. That is, such a system is pigment complex and the new color generated there is only the sum of the color of two components. The color is not invented based on generating of the energy transfer of the complicated molecular level which requires the close interaction between the components of mixture.

F.W. Harris et.al. -- ACS Symp.Ser. -- in 132 and 39 (1980) for use with the possibility in application of space As (as a part of their investigations into) as a part of research of them concerning phenyl-ized PIORON (pyrrolones)
, and a model ingredient compounds 1, 2, and 3 and 4- tetra--- [phenyl-benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-] a] iso indole-11-ON is indicated. However, the fluorescence behavior is not suggested at all.

The fluorescence compound which the purpose concerning this invention does not show the above-mentioned fault in this way, Firm solid state fluorescence is shown. desirable -- a compound and - firefly luminescence firm [being strengthened greatly] -- having - an emission spectrum there It is in the visible region of an electromagnetic spectrum preferably, and can excite using the wavelength of both - UV and a visible region. - the light stability and outdoor endurance which were very excellent -- being shown - selection of a suitable guest molecule -- letting it pass -- an extensive emission spectrum -- being shown (color adjustment) - high thermal stability -- having - easy -- that is, precipitate (coprecipitation) -- by law If chosen out of the group which it is prepared, and can use for manufacture of - electroluminescence device, and a host chromophore becomes from [benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-] a] iso indole-11-ON It was finding out the compound which should mean the derivative of [benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-] a] iso indole-11-ON as a basic material.

furthermore, the enhancement factor of the compound of this invention -- desirable -- all -- a positive number -- it is -- at least 1.3 -- more -- desirable -- at least 2 -- and it is at least 5 most preferably. The vocabulary "an enhancement factor" used in this specification is defined as a factor which increases or decreases in the luminescence peak wavelength of the solid state powder containing the host and guest fluorescence part in comparison with the same powder which does not contain any fluorescence guest parts on the strength. As long as excitation radiation wavelength is the same, it is thought that a comparison is truth. Generally, the luminescence wavelength of a host / guest ingredient happens by long wave length (low energy) more as compared with the same matter which does not contain a guest component.

Therefore, the effective dose of the guest chromophore embedded in the matrix of (a) host chromophore, Or it is a compound containing the effective dose of the host chromophore by which both were embedded in (b) polymer matrix, and a guest chromophore. The absorption spectrum of a guest

chromophore lapped with the fluorescence emission spectrum of a host chromophore, and the compound chosen from the group which a host chromophore becomes from [benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-] a] iso indole-11-ON was found out.

Furthermore, the manufacture approach of this compound, the polymerization nature compound containing this compound, the compound containing the support ingredient which has the high relief containing this compound of a photoresist ingredient by which the polymerization was carried out, The manufacture approach of the high relief image a support top carrier's fluorescence, a fluorescence ingredient, especially -- use of this compound as an electro luminescent device, and new **- functionality benzo-- a benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-imidazo a] iso indole-11-ON derivative -- moreover, it was found out.

The effective dose of the guest chromophore by which the first embodiment of this invention was embedded in the matrix of (a) host chromophore, Or it is a compound containing the effective dose of the host chromophore by which both were embedded in (b) polymer matrix, and a guest chromophore.

* NOTICES *

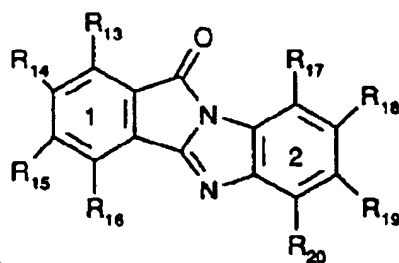
JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

- 1.(a) It is a compound containing the effective dose of the host chromophore both embedded in the effective dose of the guest chromophore embedded in the matrix of a host chromophore, or (b) polymer matrix, and a guest chromophore. Compound characterized by being chosen out of the group which the absorption spectrum of a guest chromophore laps with the fluorescence emission spectrum of a host chromophore, and a host chromophore becomes from [benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-] a] iso indole-11-ON.
- 2.(a) Compound according to claim 1 with which guest chromophore is distributed in matrix of host chromophore at homogeneity, or (b) host chromophore and guest chromophore are characterized by distributing both in polymer matrix at homogeneity.
3. Compound according to claim 1 or 2 characterized by being chosen out of group which guest chromophore becomes from Quinacridone, perylene, peri non, and diketo - and dithio keto pyrrole pyrroles, rhodamines, coumarins, xanthenes, oxazine, oxazoles, cyanines, phthalocyanines, porphyrins, styryl colors, metal complexes, and those mixture.
4. If it is Host Chromophore, Guest Chromophore, and Request, Include Polymer Matrix. The absorption spectrum of a guest chromophore laps with the fluorescence emission spectrum of a host chromophore. It is an approach for manufacturing the compound of claim 1-3 given in any 1 term. (a) A host chromophore is chosen from the group which consists of [benzo[4, 5] imidazo [2 and 1-] a]-iso indole-11-ON. (b) (c) Under existence of a solvent, mix a polymer or a polymerization nature precursor by the effective dose of a host chromophore and at least one sort of guest chromophores, and the case, and rank second. The approach characterized by settling a host and a guest chromophore under existence of the polymer of a process (b) by the case, or settling a host and a guest chromophore during the polymerization reaction of the polymer precursor of the (d) process (b).
5. It is the compound which is a polymerization nature compound, is mixed with both the compound of the gestalt of the powder containing a particle according to claim 1 or the host according to claim 1 preferably dissolved into it and a guest chromophore, or them, and contains a polymerization nature monomer or a prepolymer.
6. Compound characterized by including support ingredient (it containing compound of gestalt of powder containing particle distributed there at dissolution/or homogeneity according to claim 1 or host according to claim 1 and guest chromophore, or both if this is request) which has high relief image of photoresist ingredient by which is compound and polymerization was carried out.
7. the approach of manufacturing the high relief image of fluorescence on support -- it is -- the bottom of electric shielding -- or the approach characterized by drying preferably, irradiating or laser writing in the covered photopolymerization nature compound according to claim 5 on the support removed in the solvent under electric shielding, developing the exposed compound, and subsequently removing a *-exposure part finally by laser note.
8. Use of compound manufactured by compound or approach according to claim 4 of claim 1-3 given in any 1 term as fluorescence ingredient.



9. Formula V :

(V)

inside [] of a formula -- R13, R14, R15, and R16 -- many -- three -- H -- it is -- at least one [and] of R13, R14, R15, and the R16 -- C1 - C18 alkyl, C1 - C18 alkoxy **C1 - C18 alkylthio, C1 - C12 alkoxy-poly C2 - C6 oxy-alkylene;

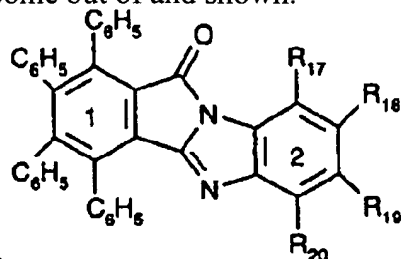
Unsubstituted or F, Cl and Br, -CN, C1-C12 alkyl, C1 - C12 alkoxy ** C1 - C12 alkylthio or C5 permuted by -NR21R22 - C8 cycloalkyl, C5 - C8 cycloalkoxy, C5 - C8 cyclo alkylthio, C5 - C8 cycloalkyl - C1 - C4 alkyl, C5 - C8 cycloalkyl - C1 - C4 alkoxy **C5 - C8 cycloalkyl - C1 - C4 alkylthio, Phenyl, phenyloxy, phenylthio, phenyl - C1 - C4 alkyl, or it is the substituent chosen from the group of phenyl-C1 - C4 alkoxy ** phenyl-C1 - C4 alkylthio --; -- or -- R13 and R14 become together. R15 and R16 become together, or R13 and R14 become together. R15 and R16 become together at a list, or R14 and R15 become together. Radical : -CH=CR24-CR25=CH-, -N=CR24-CR25=CH-, - It is chosen out of CH=CR24-CR25=N-, -CH=N-CR25=CH-, -CH=CR24-N=CH-, -N=CR24-CR25=N-, -N=CR24-N=CH-, -CH=CH-O-, -CH=CH-S-, and -CH=CH-NR23-;

Mutually-independent [of R17 and R20] is carried out, and they are H or have the semantics of R18.; Either R18 or R19 are H. Both R18, and R both [another side or] C1 - C18 alkyl, C1 - C18 alkoxy **C1 - C18 alkylthio, C1 - C12 alkoxy-poly C2 - C6 oxy-alkylene; Unsubstituted or F, Cl, Br, -CN, C1-C12 alkyl, C1 - C12 alkoxy ** C1 - C12 alkylthio or C5 permuted by -NR21R22 - C8 cycloalkyl, C5 - C8 cycloalkoxy, C5 - C8 cyclo alkylthio, C5 - C8 cycloalkyl - C1 - C4 alkyl, C5 - C8 cycloalkyl - C1 - C4 alkoxy **C5 - C8 cycloalkyl - C1 - C4 alkylthio, Phenyl, phenyloxy, phenylthio, phenyl - C1 - C4 alkyl, Phenyl - C1 - C4 alkoxy ** phenyl - C1 - C4 alkylthio, C2 - C12 alkylidene, phenyl-C[phenyl-] (O)-, phenyl-NR23-C(O)-, Phenyl-NR23-S(O)2-, phenyl-S(O)-, phenyl-S(O)2-, Phenyl-CO2-, phenyl-S(O)-O-, phenyl-SO3-, or it is the substituent chosen from the group of phenyl-NR23- or phenyl-CH=CH-; -- or -- R17 and R18 become together. R19 and R20 become together, or R17 and R18 become together. R19 and R20 become together at a list, or R18 and R19 become together. Radical : -CH=CR24-CR25=CH-, -N=CR24-CR25=CH-, - It is chosen out of the group of CH=CR24-CR25=N-, -CH=N-CR25=CH-, -CH=CR24-N=CH-, -N=CR24-CR25=N-, -N=CR24-N=CH-, -CH=CH-O-, -CH=CH-S-, and -CH=CH-NR23-;

Carrying out mutually-independent [of R21 and R22], C1 - C20 alkyl, phenyl, C1 - C12 alkylphenyl, benzyl, C1 - C12 alkyl benzyl, or R21 and R22 become together, and they are tetramethylen, pentamethylene, or -CH2CH2-O-CH2CH2-;

R23 -- H, C1 - C4 alkyl, or benzyl -- it is --; -- and -- Mutually-independent [of R24 and R25] is carried out, and they are H, C1 - C6 alkyl, C1 - C6 alkoxy **C1 - C6 alkylthio, F and Cl, or Br.

The compound come out of and shown.



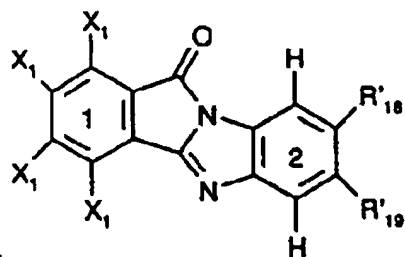
10. Formula VI :

(VI)

(Inside of a formula R17 and R20 are H. R18 and R19, or both) C1 - C1 - C18 alkyl or C18 alkoxy *****, or R18 and R19 Become together, and mean -CH=CR24-CR25=CH- and;, or R17 and R18

become together. R19 and R20 become together, or R17 and R18 become together, R19 and R20 become together at a list, and -CH=CR24-CR25=CH- is meant. Or here Mutually-independent is carried out and R24 and R25 are C1 - H, F, Cl, C1 - C8 alkyl or C8 alkoxy *****.

The compound according to claim 9 characterized by coming out and corresponding to the compound shown.



11. Formula VIa :

(VIa)

(Inside of a formula X1 is Cl or Br. Both R'18, and R'19 [one side or] mutually-independent -- carrying out -- C3 - C20 alkyl of -COOH, alpha- or alpha, and alpha-branching, or Ra-C (O) - (here, Ra) ; which means C1 - C20 alkyl or C5 - C8 cycloalkyl, C5 - C8 cycloalkyl-CH2-, phenyl, benzyl (these) it permutes by unsubstituted or the halogen, C1 - C12 alkyl, or C1 - C12 ARUKOKISHI -- it is -- or -- or -- Either R'18 or R'19 C3 - C20 alkyl or Ra-C (O) of alpha- or alpha, and alpha-branching - (here, Ra) ; which means C1 - C20 alkyl or C5 - C8 cycloalkyl, C5 - C8 cycloalkyl-CH2-, phenyl, benzyl (these) it permutes by unsubstituted or the halogen, C1 - C12 alkyl, or C1 - C12 ARUKOKISHI - - it is -- and another side of R'18 and R'19 is straight chain-like C1 - C12 alkyl

The compound come out of and shown.

12. Use of the compounds V, VI, and VIa as an organic luminescent material for the manufacture of this device in an electro RUMINEYANSU ("EL") device, and the compound of claim 1-3 given in any 1 term.

13. An electroluminescence device according to claim 12.

[Translation done.]

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.